## Reactor used for carrying out oxidation reactions has guiding tubes arranged parallel to longitudinal axis of reactor and guiding plates arranged vertical to longitudinal axis of reactor

Patent number:

DE10032304

**Publication date:** 

2002-01-17

Inventor:

OLBERT GERHARD (DE); ZEHNER PETER (DE)

Applicant:

BASF AG (DE)

Classification:

- international:

B01J8/06; F28D7/00

- european:

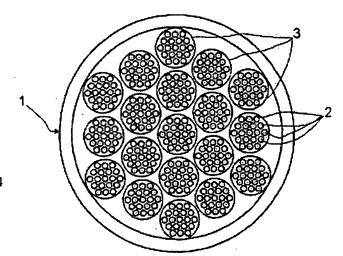
F28F9/22; B01J8/06H; B01J19/24D4; C07C17/35;

F28D7/16F

**Application number:** DE20001032304 20000704 **Priority number(s):** DE20001032304 20000704

### Abstract of DE10032304

Reactor (1) comprises a bundle of contact tubes (2) through which a reaction gas is fed; and a heat exchange medium circulation through the space surrounding the contact tubes. Guiding tubes (3) are arranged parallel to the longitudinal axis of the reactor and guiding plates (4, 5) are arranged vertical to the longitudinal axis of the reactor. Preferred Features: The reaction gas is led from above to below through the contacts tubes. The guiding tubes expose the contact tubes on their lower and upper ends over a length of 1/4 to 1/2 of the hydraulic diameter of the guiding tube.



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

by I diller work to the

## ® BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

# Offenlegungsschrift DE 100 32 304 A 1

(5) Int. Cl.<sup>7</sup>: **B 01 J 8/06** F 28 D 7/00



DEUTSCHES
PATENT- UND
MARKENAMT

② Aktenzeichen: 100 32 304.9
 ② Anmeldetag: 4. 7. 2000
 ④ Offenlegungstag: 17. 1. 2002

DE 100 32 304 A

7 Anmelder:

BASF AG, 67063 Ludwigshafen, DE

(74) Vertreter:

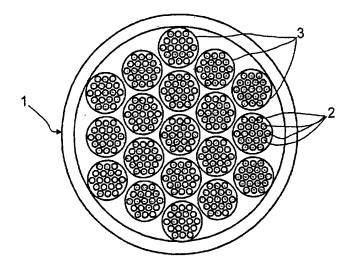
DE 100 32 304 A

Patent- und Rechtsanwälte Bardehle, Pagenberg, Dost, Altenburg, Geissler, Isenbruck, 68165 Mannheim ② Erfinder:

Olbert, Gerhard, 69221 Dossenheim, DE; Zehner, Peter, Dr., 67071 Ludwigshafen, DE

### Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

- (54) Reaktor mit einem Bündel von Kontaktrohren
- (3) Es wird ein Reaktor (1) mit einem Bündel von Kontaktrohren (2) vorgeschlagen, durch den ein Reaktionsgas geleitet wird sowie mit einem Wärmetauschmittelkreislauf durch den die Kontaktrohre (2) umgebenden Raum, mit parallel zur Längsachse des Reaktors (1) ausgerichteten Leitrohren (3), die die Kontaktrohre zu mehreren Rohrbündelgruppen zusammenfassen sowie mit senkrecht zur Längsachse des Reaktors (1) ausgerichteten Leitblechen (4, 5), die die Verteilung des Wärmetauschmittelstromes zunächst über die Zwischenräume außerhalb der Rohrbündelgruppen und erst anschließend über die Zwischenräume zwischen den einzelnen Kontaktrohren (2) jeder Rohrbündelgruppe gewährleisten.



BEST AVAILABLE COPY

[0001] Die Erfindung betrifft einen Reaktor mit einem Bündel von Kontaktrohren, durch die ein Reaktionsgas geleitet wird sowie mit einem Wärmetauschmittelkreislauf durch den die Kontaktrohre umgebenden Raum und eine Verwendung des Reaktors zur Durchführung von Oxidationsreaktionen.

[0002] Die übliche Bauart gattungsgemäßer Reaktoren besteht aus einem, in der Regel zylinderförmigen Behälter, 10 in dem ein Bündel, d. h. eine Vielzahl von Kontaktrohren, in üblicherweise vertikaler Anordnung untergebracht ist. Diese Kontaktrohre, die gegebenenfalls geträgerte Katalysatoren enthalten können, sind mit ihren Enden in Rohrböden abdichtend befestigt und münden in jeweils eine am oberen 15 bzw. am unteren Ende mit dem Behälter verbundene Haube. Über diese Hauben wird das die Kontaktrohre durchströmende Reaktionsgemisch zu- bzw. abgeführt. Durch den die Kontaktrohre umgebenden Raum wird ein Wärmetauschmittelkreislauf geleitet, um die Wärmebilanz, insbesondere 20 bei Reaktionen mit starker Wärmetönung, auszugleichen. [0003] Aus wirtschaftlichen Gründen werden Reaktoren mit einer möglichst großen Zahl von Kontaktrohren eingesetzt, wobei die Zahl der untergebrachten Kontaktrohre häufig im Bereich von 10000 bis 50000 liegt (vgl. DE- 25 A 44 31 949).

[0004] Bezüglich des Wärmetauschmittelkreislaufs ist es bekannt, in jedem waagerechten Schnitt des Reaktors eine weitgehend homogene Temperaturverteilung des Wärmetauschmittels zu realisieren, um möglichst alle Kontaktrohre gleichmäßig am Reaktionsgeschehen zu beteiligen (z. B. DE-C 16 01 162). Der Glättung der Temperaturverteilung dient die Wärmezuführung bzw. Wärmeabführung über jeweils an den Reaktorenden angebrachten äußeren Ringleitungen mit einer Vielzahl von Mantelöffnungen, wie sie beispielsweise in DE-C 34 09 159 beschrieben sind.

[0005] Eine weitere Verbesserung des Wärmeüberganges wird durch den Einbau von Umlenkscheiben erreicht, die abwechselnd in der Reaktormitte und am Reaktorrand einen Durchtrittsquerschnitt freilassen. Eine derartige Anordnung 40 ist insbesondere für ringförmig angeordnete Rohrbündel mit einem freien zentralen Raum geeignet und beispielsweise aus GB-B 310 175 bekannt.

[0006] In großen Reaktoren mit einer Zahl von Kontaktrohren im oben angegebenen Bereich von etwa 10000 bis 45 50000, die zusätzlich mit Umlenkscheiben ausgestattet sind, ist der Druckverlust des Wärmetauschmittels vergleichsweise sehr groß. So muß die zum Abtransport der bei Oxidationsreaktionen freiwerdenden Wärme häufig verwendete eutektische Salzschmelze von Kaliumnitrat und Natriumnitrit, die bei einer Anwendungstemperatur von ca. 350 bis 400°C eine wasserähnliche Viskosität aufweist, in einen Reaktor der oben erwähnten Größe mit einer Förderhöhe von ca. 4 bis 5 m gepumpt werden, um den Druckverlust zu überwinden.

[0007] Der hohe Druckverlust kann durch Verzicht auf den Einbau von Umlenkscheiben und somit auf die Querstromführung des Wärmetauschmittels reduziert werden. Der Verzicht auf Umlenkscheiben ergibt eine Längsströmung des Wärmetauschmittels durch den die Kontaktrohre 60 umgebenden Raum. Durch Abbremsen des Wärmetauschmittels an den Rohrwänden bildet sich ein Strömungsprofil in Längsrichtung aus mit der Folge, daß der Wärmeübergang zunehmend schlechter wird, mit negativen Auswirkungen auf die Selektivität der Reaktion und die Katalysatorstandzeit.

[0008] Aufgabe der Erfindung war es demgegenüber, die Gleichverteilung des Wärmetauschmittels über den Reak-

torquerschnitt und state das radiale Temperaturprofil im Reaktor wie auch die Temperaturverteilung entlang der Kontaktrohre, d. h. das axiale Temperaturprofil über die Längsachse des Reaktors weiter zu vergleichmäßigen.

5 [0009] Die Lösung geht aus von einem Reaktor mit einem Bündel von Kontaktrohren, durch die ein Reaktionsgas geleitet wird sowie mit einem Wärmetauschmittelkreislauf durch den die Kontaktrohre umgebenden Raum.

[0010] Die Erfindung ist dadurch gekennzeichnet, daß parallel zur Längsachse des Reaktors ausgerichtete Leitrohre, die die Kontaktrohre zu mehreren Rohrbündelgruppen zusammenfassen unter Freilassung der oberen und unteren Enden der Kontaktrohre sowie senkrecht zur Längsachse des Reaktors ausgerichtete Leitbleche, die die Verteilung des Wärmetauschmittelstromes zunächst über die Zwischenräume außerhalb der Rohrbündelgruppen und erst anschließend über die Zwischenräume zwischen den einzelnen Kontaktrohren jeder Rohrbündelgruppe gewährleisten, vorgesehen sind.

des Wärmetauschmittelstromes mittels Leitrohren, die parallel zu den Kontaktrohren ausgerichtet sind sowie mittels Leitblechen, die quer zur Rohrlängsrichtung liegen, eine weitgehend gleichmäßige Verteilung des Wärmetauschmittelstromes über den Reaktorquerschnitt erreicht werden kann. Insbesondere bei großen Reaktoren, mit einer Vielzahl von Kontaktrohren, kann durch die erfindungsgemäße Ausgestaltung eine verbesserte Anströmung auch der weiter innen im Reaktor angeordneten Kontaktrohre gewährleistet werden, die bei bekannten Reaktoren, in Folge des Druckverlustes, benachteiligt sind.

[0012] Das Material der erfindungsgemäß eingesetzten Leitrohre ist in der Regel Stahlblech, mit einer Wandstärke, die ausreichend dimensioniert ist, um die mechanische Stabilität zu gewährleisten. Bezüglich des Rohrquerschnitts gibt es grundsätzlich keine Einschränkungen; es können sowohl Rohre mit kreisförmigem oder auch polygonalem Querschnitt eingesetzt werden. Besonders geeignet sind Rohre mit hexagonalem Querschnitt, weil sie eine geometrische Anordnung erlauben, die Zwischenräume mit konstantem Querschnitt außerhalb der Rohrbündelgruppen und somit eine gute Durchströmung derselben durch das Wärmetauschmittel bilden.

[0013] Um eine gleichmäßige Strömungsführung zu gewährleisten sind die Leitrohre in der Regel untereinander in gleicher Länge ausgebildet.

[0014] Um die erfindungsgemäße Verteilung des Wärmetauschmittelstromes zunächst über die Zwischenräume au-Berhalb der Rohrbündelgruppen und erst anschließend über die Zwischenräume zwischen den einzelnen Kontaktrohren jeder Rohrbündelgruppe zu gewährleisten ist es erforderlich, zusätzlich zu den Leitrohren, die parallel zur Längsachse des Reaktors ausgerichtet sind und die die Kontaktrohre zu Rohrbündelgruppen zusammenfassen, Leitbleche 55 vorzusehen, die senkrecht zur Reaktorlängsachse ausgerichtet sind. Bezüglich des Materials der Leitbleche gilt das zu den Leitrohren angeführte analog. Die Leitbleche müssen sich jeweils über den gesamten freien Reaktorquerschnitt in den Zwischenräumen außerhalb der Rohrbündelgruppen erstrecken. Hierbei ist es nicht erforderlich, dieselben vollständig flüssigkeitsdicht an den Leitrohren anzuordnen, es genügt, daß sie den überwiegenden Teil des flüssigen Wärmetauschmittelstromes in die jeweils gewünschte Richtung umlenken.

5 [0015] Die Leitrohre erstrecken sich nicht über die gesamte Länge der Kontaktrohre, weil bei einer derartigen Anordnung die Einströmung in die Zwischenräume zwischen den Kontaktrohren einzelner Rohrbündelgruppen und somit die Funktion des Wärmetausch auch ls zur Abführung der Reaktionswärme blockiert wäre, sondern lassen die oberen und unteren Enden der Kontaktrohre frei, bevorzugt über eine Länge im Bereich von jeweils ¼ bis ½ des hydraulischen Durchmessers der Leitrohre. Hierbei können die unteren und oberen freigelassenen Enden gleich oder verschieden lang sein.

[0016] Eine Ausführungsvariante sieht den Einsatz von Leitrohren vor, die zusätzlich im mittleren Reaktorbereich, auf einer Länge von ¼ bis ½ des hydraulischen Durchmessers der Leitrohre unterbrochen sind. In dieser Ausführungsform ist je ein Leitblech im oberen und im unteren Reaktorbereich vorgesehen, die die Zwischenräume außerhalb der Rohrbündelgruppen in einen mittleren, einen oberen und einen unteren Bereich auftrennen. Das Wärmetauschmittel 15 wird in den mittleren Bereich, insbesondere über eine Ringleitung, zugeführt und aus dem oberen und unteren Bereich, insbesondere über Ringleitungen, abgeführt.

[0017] Eine weitere Ausführungsvariante sieht ein einziges Leitblech vor, das die Zwischenräume außerhalb der Rohrbündelgruppen in einen unteren und einen oberen Bereich trennt. Das Wärmetauschmittel wird, bevorzugt über eine Ringleitung, in den oberen Bereich zugeführt und über den unteren Bereich, bevorzugt über eine Ringleitung, abgeführt. Besonders bevorzugt ist das Leitblech unterhalb der Reaktormitte angeordnet, insbesondere auf einer Reaktorhöhe dergestalt, daß das Leitblech die Zwischenräume zwischen den Rohrbündelgruppen im oberen und unteren Reaktorbereich in einem Verhältnis von 1 zu 2 bis 2 zu 1, bevorzugt von 1 zu 1 des Gesamtvolumens der oberen Zwischenräume teilt.

[0018] Bevorzugt sind innerhalb der einzelnen Rohrbündelgruppen in den Bereichen zwischen den Kontaktrohren Füllkörper, insbesondere metallische Packungen oder ein 35 keramisches Schüttgut, bevorzugt Ringe oder Kugeln, eingebracht. Dadurch wird der Wärmeübergang zwischen dem Wärmetauschmittel und den Wänden der Kontaktrohre verbessert.

[0019] Der erfindungsgemäße Reaktor eignet sich bevorzugt zur Durchführung von Oxidationsreaktionen, insbesondere zur Herstellung von Phthalsäureanhydrid, Maleinsäureanhydrid, Glyoxal, (Meth)acrolein oder (Meth)acrylsäure.
[0020] Die Erfindung wird im folgenden anhand einer Zeichnung und von Ausführungsbeispielen näher erläutert. 45 In den Figuren bezeichnen gleiche Bezugsziffern gleiche oder entsprechende Merkmale.

[0021] Es zeigen im einzelnen:

[0022] Fig. 1 einen Längsschnitt durch eine erste Ausführungsvariante eines erfindungsgemäßen Reaktors, mit Querschnitt A-A in Fig. 1a und 1b, die zwei unterschiedliche geometrische Ausgestaltungen der Leitbleche verdeutlichen und

[0023] Fig. 2 einen Längsschnitt durch eine zweite bevorzugte Ausführungsform eines erfindungsgemäßen Reaktors. 55 [0024] Der in Fig. 1 im Längsschnitt beispielhaft dargestellte Reaktor 1 enthält ein vertikales Bündel von Kontaktrohren 2 sowie Leitrohre 3, die die Kontaktrohre 2 zu Rohrbündelgruppen zusammenfassen. Die Leitrohre 3 können beispielhaft mit kreisförmigem Querschnitt ausgebildet 60 sein, wie in Fig. 1a dargestellt, oder aber auch beispielhaft mit hexagonalem Querschnitt, wie in Fig. 1b dargestellt.

[0025] In der in Fig. 1 dargestellten Ausführungsvariante lassen die Leitrohre 3 die oberen und unteren Enden der Kontaktrohre 2 offen und sind zusätzlich im Bereich der Reaktormitte unterbrochen.

[0026] Über die Zuführung 6 wird Wärmetauschmittel in den Zwischenraum zwischen den Rohrbündelgruppen im

mittleren Reaktorbereich führt und über die obere Abführung 7 sowie über die und Abführung 8 aus dem oberen bzw. unteren Zwischenraum zwischen den Rohrbündelgruppen abgeführt.

5 [0027] Die in Fig. 2 schematisch im Längsschnitt dargestellte weitere bevorzugte Ausführungsform eines erfindungsgemäßen Reaktors zeigt, abweichend von in Fig. 1 dargestellten Reaktor, keine Unterbrechung der Leitbleche 3 im mittleren Reaktorbereich sowie lediglich ein horizontales Leitblech 4, das bevorzugt unterhalb der Reaktormitte angeordnet ist. Das Wärmetauschmittel strömt über Zuführung 6 in den oberen Zwischenraum zwischen den Rohrbündelgruppen, tritt im obersten Teil des Reaktors in die Zwischenräume zwischen den Kontaktrohren 2 der einzelnen Rohrbündelgruppen ein, durchströmt den Reaktor von oben nach unten, und tritt im unteren Reaktorbereich aus den Zwischenräumen zwischen den Kontaktrohren der einzelnen Rohrbündelgruppen über die Zwischenräume zwischen den Rohrbündelgruppen über Abführung 7 aus dem Reaktor aus.

#### Patentansprüche

- 1. Reaktor (1) mit einem Bündel von Kontaktrohren (2), durch die ein Reaktionsgas geleitet wird sowie mit einem Wärmetauschmittelkreislauf durch den die Kontaktrohre (2) umgebenden Raum, gekennzeichnet durch parallel zur Längsachse des Reaktors (1) ausgerichtete Leitrohre (3), die die Kontaktrohre (2) zu mehreren Rohrbündelgruppen zusammenfassen unter Freilassung der oberen und unteren Enden der Kontaktrohre (2) sowie durch senkrecht zur Längsachse des Reaktors (1) ausgerichtete Leitbleche (4, 5), die die Verteilung des Wärmetauschmittelstromes zunächst über die Zwischenräume außerhalb der Rohrbündelgruppen und erst anschließend über die Zwischenräume zwischen den einzelnen Kontaktrohren (2) jeder Rohrbündelgruppe gewährleisten.
- 2. Reaktor nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Reaktionsgas von oben nach unten durch die Kontaktrohre (2) geleitet wird.
- 3. Reaktor (1) nach einem der Ansprüche 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Leitrohre (3) die Kontaktrohre (2) an deren unteren und oberen Enden über eine Länge im Bereich von jeweils ¼ bis ½ des hydraulischen Durchmessers der Leitrohre (3) freilassen.
- 4. Reaktor (1) nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Leitrohre (3) im mittleren Reaktorbereich auf einer Länge von ¼ bis ½ des hydraulischen Durchmessers der Leitrohre (3) unterbrochen sind und daß je ein Leitblech im oberen Reaktorbereich (4) und ein Leitblech im unteren Reaktorbereich (5) die Zwischenräume außerhalb der Rohrbündelgruppen in einen mittleren, einen oberen und einen unteren Bereich trennen, mit einer Zuführung (6) für das Wärmetauschmittel, insbesondere über eine Ringleitung, in den mittleren Reaktorbereich und Abführungen (7, 8), insbesondere über Ringleitungen, aus dem oberen und unteren Reaktorbereich.
- 5. Reaktor nach Anspruch 2, gekennzeichnet durch ein Leitblech (4), das den Zwischenraum außerhalb der Rohrbündelgruppen in einen unteren und einen oberen Bereich trennt, mit Zuführung (6) des Wärmetauschmittels über den oberen Reaktorbereich und Abführung (7) des Wärmetauschmittels über den unteren Reaktorbereich, bevorzugt über je eine Ringleitung.
- 6. Reaktor nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß das Leitblech (4) unterhalb der Reaktormitte angeordnet ist, bevorzugt auf einer Reaktorhöhe dergestalt,

6

daß das Leitblech (4) wischenräume zwischen den Rohrbündelgruppen hem Verhältnis von im Bereich von 1 zu 2 bis 2 zu 1, bevorzugt von 1 zu 1 des Gesamtvolumens der oberen Zwischenräume zum Gesamtvolumen der unteren Zwischenräume teilt.

7. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß innerhalb jeder Rohrbündelgruppe in die Zwischenräume zwischen den Kontaktrohren (2) Füllkörper, insbesondere metallische Pakkungen oder ein keramisches Schüttgut, bevorzugt in 10 Form von Ringen oder Kugeln, eingebracht ist.

8. Verwendung des Reaktors nach einem der Ansprüche 1 bis 7 zur Durchführung von Oxidationsreaktionen, insbesondere zur Herstellung von Phthalsäureanhydrid, Maleinsäureanhydrid, Glyoxal, (Meth)acrolein 15

oder (Meth)acrylsäure.

Hierzu 2 Seite(n) Zeichnungen

20

25

### BEST AVAILABLE COPY

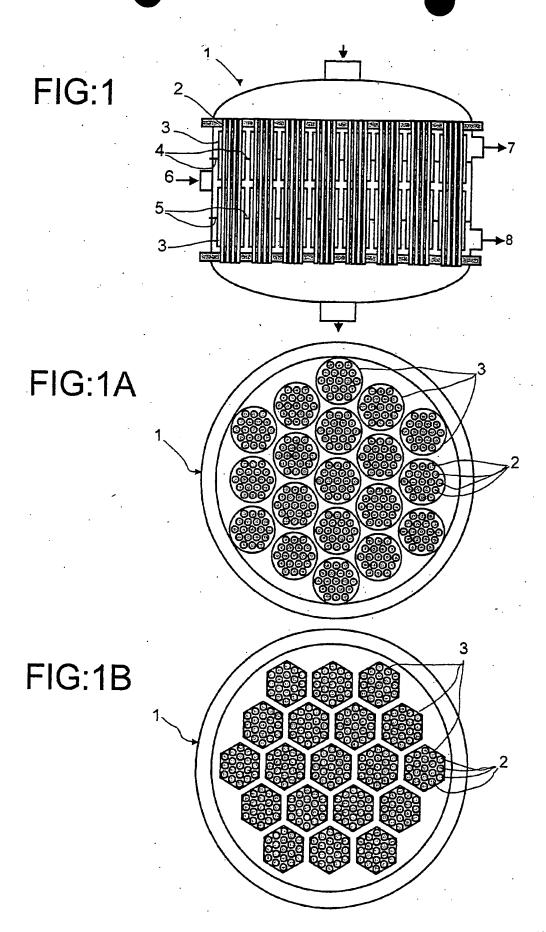
40

45

50

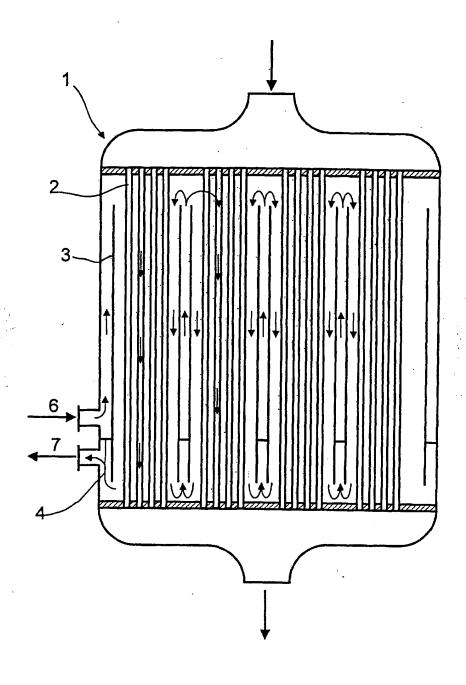
55

60



DE 100 32 304 A1 B 01 J 8/06 17. Januar 2002





THIS PAGE BLANK (USPTO)